

0- 788031

На правах рукописи



МИНГАЛИЕВ Евгений Альбертович

**ФОРМИРОВАНИЕ НАНОДОМЕННЫХ СТРУКТУР ПРИ
ПЕРЕКЛЮЧЕНИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ В СИЛЬНОНЕРАВНОВЕСНЫХ
УСЛОВИЯХ В МОНОКРИСТАЛЛАХ ГЕРМАНАТА СВИНЦА,
НИОБАТА ЛИТИЯ И ТАНТАЛАТА ЛИТИЯ**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2011

Работа выполнена на кафедре компьютерной физики и в лаборатории сегнетоэлектриков отдела оптоэлектроники и полупроводниковой техники НИИ физики и прикладной математики ГОУ ВПО “Уральский государственный университет им. А.М. Горького”.

Научный руководитель – доктор физико-математических наук,
профессор
Шур Владимир Яковлевич

Официальные оппоненты – доктор физико-математических наук,
профессор
Важенин Владимир Александрович

доктор физико-математических наук,
профессор
Сидоркин Александр Степанович

Ведущая организация – ГОУ ВПО Тверской государственный
университет

Защита состоится 9 июня 2011 г. в 15 часов на заседании диссертационного совета Д 212.286.01 по защите докторских и кандидатских диссертаций при ГОУ ВПО “Уральский государственный университет им. А.М. Горького” (620000, г. Екатеринбург, пр. Ленина 51, комн. 248).

С диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке ГОУ ВПО «Уральский государственный университет им. А.М. Горького».

Автореферат разослан « 6 » мая 2011 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
доктор физ.-мат. наук



Н.В. Кудреватых



ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Исследование кинетики структурных фазовых переходов в физике конденсированного состояния представляет значительный интерес для изучения общих закономерностей кинетики фазовых превращений. Особый интерес представляют сегнетоэлектрические кристаллы, обладающие спонтанной поляризацией, направление которой можно изменять воздействием электрического поля. Процесс переключения поляризации, сопровождаемый изменением доменной структуры (ДС) за счет образования и роста доменов в поле, может быть рассмотрен как аналог фазового превращения при фазовом переходе первого рода.

Изучение влияния процессов экранирования на эволюцию ДС представляет собой важную фундаментальную проблему физики сегнетоэлектриков. В качестве модельных объектов для таких исследований могут быть использованы одноосные сегнетоэлектрики германат свинца $Pb_5Ge_3O_{11}$, ниобат лития $LiNbO_3$ и танталат лития $LiTaO_3$, обладающие простой и наблюдаемой оптическими методами ДС.

Сегнетоэлектрические кристаллы ниобата лития и танталата лития обладают большими значениями нелинейно-оптических и электрооптических коэффициентов и широко используются для создания нелинейно-оптических устройств. Кристаллы ниобата лития с прецизионной регулярной доменной структурой (РДС) с микронными периодами используются для выполнения условия фазового квазисинхронизма при преобразовании длины волны лазерного излучения. В настоящее время рассматривается возможность перехода к субмикронным периодам доменных структур, что откроет возможность создания принципиально нового класса электрооптических и нелинейно-оптических устройств. Особый интерес представляет реализация эффекта параметрической генерации света обратной волны. В кристалле с периодом доменной структуры менее 3 мкм (для большей эффективности – менее микрона) может быть получена без резонатора стабильная по спектру и мощности параметрическая генерация света. Кроме того кристаллы ниобата лития и танталата лития с субмикронными РДС позволят создать электрооптические переключаемые Брэгговские решетки для спектрально-селективной коммутации когерентного излучения.

Традиционные методы создания РДС, среди которых, несомненно, лидирует приложение внешнего электрического поля, не позволяют создать прецизионные субмикронные ДС. В последние годы показано, что при сильнонеравновесных условиях переключения, обусловленных неэффективным экранированием деполаризующих полей, возникает самоорганизованная ДС, состоящая из нанодоменных лучей [1]. Известно несколько методов реализации сильнонеравновесных условий переключения: «сверхбыстрое переключение» в сверхсильных полях, модификация поверхностного слоя и переключение пироэлектрическим полем после импульсного нагрева, в частности, лазерным облучением. Кинетика доменов при переключении в сверхсильных полях и при воздействии пироэлектрического поля до сих пор не исследовалась систематически.

Последовательное исследование кинетики формирования нанодоменных структур открывает пути к развитию нанодоменной инженерии и формированию РДС с заданными параметрами.

Таким образом, изучение кинетики нанодоменных структур в одноосных сегнетоэлектриках в сильнонеравновесных условиях переключения имеет важное фундаментальное и прикладное значение.

Целью работы является экспериментальное исследование формирования нанодоменных структур в сильнонеравновесных условиях, обусловленных неэффективным экранированием деполяризующих полей, реализуемых при «сверхбыстром движении» доменных стенок в германате свинца и при воздействии пироэлектрического поля в ниобате лития и танталате лития.

Для реализации цели были сформулированы следующие основные задачи:

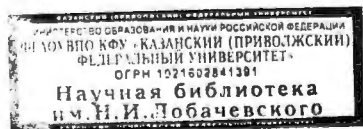
1. Исследовать кинетику доменной структуры в германате свинца в широком диапазоне скоростей бокового движения доменных границ.
2. Исследовать и рассчитать температурную зависимость пироэлектрического поля в ниобате лития при однородном нагреве и охлаждении.
3. Исследовать изменение размеров изолированных несквозных доменов с заряженными стенками в результате нагрева и охлаждения.
4. Исследовать формирование доменной структуры после нагрева поверхности пропусканием импульсов тока вдоль электрода.
5. Исследовать с высоким разрешением по времени кинетику доменной структуры после локального нагрева импульсами ИК лазерного излучения.
6. Исследовать зависимости параметров нанодоменных структур, формирующихся в результате локального лазерного нагрева, от температуры пластины, длительности и количества импульсов.
7. Исследовать процессы формирования регулярных доменных структур в ниобате лития и танталате лития.

Объекты исследования.

Формирование нанодоменных структур исследовалось в монокристаллах трех различных одноосных модельных сегнетоэлектриков.

Германат свинца $\text{Pb}_3\text{Ge}_2\text{O}_{11}$ (PGO) обладает уникальными свойствами – оптической активностью, знак которой зависит от направления спонтанной поляризации, что позволяет визуализировать домены, и воспроизводимой кинетикой доменов при циклическом переключении, что позволяет использовать стробоскопическое освещение для исследования кинетики ДС в широком диапазоне времен переключения с высоким разрешением по времени.

Конгруэнтный ниобат лития LiNbO_3 (CLN), легированный MgO конгруэнтный ниобат лития (MgO:CLN) и конгруэнтный танталат лития LiTaO_3 (CLT) широко применяются в нелинейно-оптических устройствах. Они обладают большими электрооптическими и пироэлектрическими коэффициентами, что открывает уникальные возможности для визуализации ДС при переключении в пироэлектрическом поле, а также для исследования температурной зависимости пироэлектрического поля при однородном нагреве и охлаждении с контролируемой скоростью и процесса формирования самоорганизованных нанодоменных структур в результате импульсного лазерного облучения.



Научная новизна работы заключается в комплексном исследовании процесса формирования самоорганизованных микро- и нанодоменных структур в одноосных сегнетоэлектриках в сильнонеравновесных условиях переключения.

- Впервые показано, что в германате свинца при неполном экранировании формируется фрактальная доменная структура, а при неэффективном экранировании перед стенкой возникают субмикронные изолированные домены.
- Обнаружен температурный гистерезис пьезоэлектрического поля в ниобате лития и рассчитана зависимость его параметров от условий нагрева/охлаждения.
- Впервые экспериментально показано, что несквозные домены, в отличие от сквозных, увеличиваются при нагреве и уменьшаются при охлаждении.
- Впервые получен ориентированный рост доменных лучей в пьезоэлектрическом поле после нагрева поверхности пропусканием тока вдоль электрода.
- Впервые выявлены стадии формирования нанодоменной структуры после ИК облучения, зависимости от времени общей длины доменных лучей и анизотропии их роста.
- Зависимости параметров нанодоменных структур, полученных после локального лазерного нагрева, от температуры пластины и длительности импульса объяснены переключением под действием пьезоэлектрического поля.
- Впервые выявлен эффект потери устойчивости формы доменной стенки после серии ИК лазерных импульсов.
- Показана возможность формирования регулярных доменных структур в ниобате лития при многократном неоднородном импульсном нагреве, что открывает возможности для создания нелинейно-оптических устройств нового поколения.

Практическая значимость

Полученные результаты создают фундаментальные основы для развития качественно нового направления доменной инженерии, связанного с созданием субмикронных регулярных доменных структур в монокристаллах семейства ниобата лития и танталата лития для нового поколения устройств нелинейной оптики. В том числе, устройств, использующих эффект параметрической генерации света обратной волны, а также электрооптических переключаемых Брэгговских решеток для спектрально-селективной коммутации когерентного излучения. Кроме того при производстве нелинейно-оптических устройств с использованием фотолитографии неизбежна термическая обработка фоторезиста, что приводит к изменению созданной доменной структуры или монодоменного состояния за счет неконтролируемого воздействия пьезоэлектрического поля. Полученные в работе результаты открывают возможность расчета оптимальных режимов нагрева и охлаждения.

Достоверность полученных результатов обеспечивается применением современного аттестованного оборудования, использованием независимых методов обработки данных, согласием с экспериментальными результатами других авторов и непротиворечивостью известным физическим моделям. Достоверность проведенных расчетов подтверждается использованием современного программного обеспечения, обоснованностью принятых допущений, точностью математических методов решения, выкладок и расчетов.

Основные положения и результаты, выносимые на защиту:

1. Формирование фрактальной доменной структуры в германате свинца при неполном экранировании и возникновение субмикронных изолированных доменов при неэффективном экранировании.
2. Зависимость параметров температурного гистерезиса пьезоэлектрического поля в LN от условий нагрева/охлаждения.
3. Изменение размеров несквозных доменов в LN при нагреве и охлаждении.
4. Ориентированный рост доменных лучей в пьезоэлектрическом поле после нагрева полярной поверхности пропусканием тока.
5. Стадии формирования нанодоменной структуры после ИК облучения и зависимости от времени длины доменных лучей и анизотропии их роста.
6. Эффект потери устойчивости формы доменной стенки в LN после серии ИК лазерных импульсов.
7. Формирование регулярных доменных структур в ниобате лития при многократном неоднородном импульсном нагреве.

Апробация работы. Основные результаты были представлены на 18 всероссийских и международных конференциях и симпозиумах: Международном симпозиуме по нанофизике и наноэлектронике (25-29.03.2005, Нижний Новгород), XVII Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков (26-30.06.2005, Пенза), 11th International Meeting on Ferroelectricity (5-9.09.2005, Foz do Iguacu-Puerto Iguazu, Brazil-Argentina), International Symposium "Micro- and Nano-scale Domain Structuring in Ferroelectrics" (15-19.11.2005, Ekaterinburg), 6^{on} международном семинаре "Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении" (18-22.10.2006, Астрахань), 19th International Symposium on Integrated Ferroelectrics (8-12.05.2007, Bordeaux, France), 2nd International Symposium "Micro- and Nano-scale Domain Structuring in Ferroelectrics" (22-27.08.2007, Ekaterinburg), 6^{on} Всероссийской школе-конференции "Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении (индустрия наносистем и материалы)" (14-20.10.2007, Воронеж), XVIII Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков (12-14.06.2008, Санкт-Петербург), 3rd International Symposium "Micro- and Nano-scale Domain Structuring in Ferroelectrics" (13-18.09.2009, Ekaterinburg), 6th International Seminar on Ferroelastic Materials (22-25.09.2009, Voronezh), 7^{on} Всероссийской школе-конференции "Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении (индустрия наносистем и материалы)" (28.09-2.10.2009, Воронеж), 7^{on} Курчатовской молодёжной научной школе (10-12.11.2009, Москва), XXIII российской конференции по электронной микроскопии (31.05-04.06.2010, Черноголовка), 10th Russia/CIS/Baltic /Japan Symposium on Ferroelectricity (20-24.06.2010, Yokohama, Japan), International Conference "Fundamentals of Laser Assisted Micro- and Nanotechnologies" (5-8.07.2010, St. Petersburg – Pushkin), 10th International Symposium on Ferroic Domains and Micro- to Nanoscopic Structures (20-24.09.2010, Prague, Czech Republic), XI Всероссийской молодёжной школы-семинаре по проблемам физики конденсированного состояния вещества (СПФКС-11) памяти академика Литвинова Б.В. (15-21.11.2010, Екатеринбург).

Публикации и личный вклад автора. Основные результаты исследований опубликованы в 29 печатных работах, из них 5 статей во всероссийских и зарубежных реферируемых печатных изданиях и 24 тезиса российских и международных конференций. Диссертационная работа выполнена в лаборатории сегнетоэлектриков отдела оптоэлектроники и полупроводниковой техники НИИ физики и прикладной математики ФГБОУ ВПО «Уральский государственный университет им. А.М. Горького» в рамках исследований, проводимых при частичной поддержке грантов Федерального агентства по образованию: П870, «Развитие методов доменной инженерии для формирования прецизионных периодических микро- и нанодоменных структур в сегнетоэлектриках и разработка преобразователей длины волны лазерного излучения на их основе» (2009-2011); Федерального агентства по науке и инновациям: 02.740.11.0171 «Высокоточные измерительные приборы и высокоэффективные функциональные устройства на основе новых физических принципов» (2009-2011), 02.552.11.7069 «Проведение поисковых научно-исследовательских работ в области разработки наноструктурированных сред с улучшенными магнитными, электрическими и оптическими свойствами для функциональной электроники в Уральском центре коллективного пользования «Современные нанотехнологии» УрГУ им. А.М. Горького» (2009-2011).

Все основные результаты работы были получены лично автором или при его активном участии. Выбор направления исследований, обсуждение результатов и формулировка задач проводились совместно с научным руководителем профессором В.Я. Шуром и к.ф.-м.н. Д.К. Кузнецовым. Все эксперименты, включая анализ и обработку результатов, и компьютерное моделирование пирозлектрических полей проводилось автором лично. Исследование доменных структур методами сканирующей зондовой микроскопии проводилось совместно с А.В. Иевлевым и В.А. Лебедевым. Исследование доменных структур методами сканирующей лазерной конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния проводилось совместно с П.С. Зеленовским, М.С. Небогатиковым и Д.О. Аликиным.

Структура и объем диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав, заключения и списка цитируемой литературы. Общий объем работы составляет 145 страниц, включая 74 рисунка, список условных обозначений и библиографию из 114 наименования.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы основные цели и задачи работы, определен объект исследований, показаны научная новизна и практическая значимость полученных результатов. Кратко изложены основные научные положения, выносимые на защиту. Приведены сведения об апробации работы, личном вкладе автора, структуре и объеме диссертации.

Первая глава является обзорной. В ней изложены основные свойства сегнетоэлектриков, современные представления о кинетике доменной структуры (ДС) как аналоге фазового перехода первого рода. Особое внимание уделено эволюции ДС в сильнонеравновесных условиях переключения поляризации. Описаны основные физические свойства монокристаллов германата свинца $Pb_3Ge_3O_{11}$ (PGO),

монокристаллов семейства ниобата лития LiNbO_3 (LN) и танталата лития LiTaO_3 (LT). Представлены экспериментальные методы исследования ДС. Приведён обзор полученных ранее экспериментальных результатов по переключению поляризации в монокристаллах LN в результате импульсного лазерного облучения.

Принято считать, что эволюция ДС при переключении поляризации происходит за счет зародышеобразования, движущей силой которого является макроскопическое электрическое поле $E_{\text{в}}$, усредненное по объему зародыша [1]. Это поле является суперпозицией приложенного к кристаллу внешнего поля $E_{\text{вх}}$, деполяризующего поля $E_{\text{деп}}$ и полей внешнего E_{scr} и объемного $E_{\text{в}}$ экранирования. Существование собственного поверхностного диэлектрического слоя приводит к тому, что быстрое внешнее экранирование не может полностью скомпенсировать $E_{\text{деп}}$ [2] и в объеме существует остаточное деполяризующее поле $E_{\text{рд}}$. Медленные процессы объемного экранирования компенсируют $E_{\text{рд}}$ и стабилизируют ДС. В процессе переключения поляризации происходит изменение ДС за счет появления новых доменов (3D зародыши) и роста существующих за счёт образования ступенек (2D зародышеобразование) на существующих доменных стенках и их роста (1D зародышеобразование). Вероятность зародышеобразования p пропорциональна $\exp(-E_{\text{th}}/E_{\text{с}})$, где E_{th} пороговое поле зародышеобразования соответствующей размерности. При этом $p_{1D} > p_{2D} > p_{3D}$.

Запаздывание экранирования деполяризующего поля приводит к отклонению от равновесных условий переключения и аномальной кинетике ДС [3]. Неэффективность экранирования R равна отношению времени экранирования τ_{scr} к времени полного переключения $t_{\text{с}}$: $R = \tau_{\text{scr}}/t_{\text{с}}$. В зависимости от величины R , выделяют три различных режима: 1) $R < 1$ - «полное экранирование», при котором наблюдается «классическое» переключение за счет параллельного движения плоских доменных стенок и роста доменов в форме правильных многогранников; 2) $R \geq 1$ - «неполное экранирование», при котором наблюдается рост доменов неправильной формы и самопроизвольное обратное переключение после выключения внешнего поля. 3) $R \gg 1$ - «неэффективное экранирование» (**сильнонеравновесные условия переключения**) при котором боковое движение доменных стенок полностью подавлено, и наблюдается «дискретное переключение», представляющее собой самоорганизованный рост ансамблей изолированных нанодоменов, благодаря эффекту коррелированного зародышеобразования [3].

Известно три группы методов получения сильнонеравновесных условий переключения: 1) «сверхбыстрое переключение» в сверхсильных полях, 2) создание искусственного поверхностного диэлектрического слоя, 3) переключение пироэлектрическим полем, возникающим при охлаждении после импульсного нагрева.

Впервые эффект дискретного переключения наблюдался в PGO [4], когда в сверхсильных постоянных полях (>15 кВ/см) перед доменной стенкой происходило повторяющееся образование цепей доменов и их слияние с растущим доменом – эффект «**коррелированного зародышеобразования**». Воздействие серии импульсов приводило к образованию цепей несквозных иглообразных доменов, окружающих исходный домен, и образованию широкой области из множества мелких доменов - «широкой доменной стенки» [5].

В CLN формирование нанодоменов было впервые получено при самопроизвольном обратном переключении [6]. Позднее было показано, что импульсное облучение CLN излучением ультрафиолетового (УФ) [7] или инфракрасного (ИК) [8] лазера приводит к формированию цепей изолированных нанодоменов. С помощью компьютерного моделирования было установлено, что эффект обусловлен действием пьезоэлектрического поля, возникающего при охлаждении кристалла после окончания лазерного импульса [13].

Вторая глава является методической и содержит информацию о характеристиках исследуемых образцов, а также об использованных экспериментальных установках и экспериментальных методиках.

Исследовались монокристаллические пластины PGO, конгруэнтного ниобата лития (CLN), легированного 5% MgO ниобата лития (MgO:CLN), и конгруэнтного танталата лития (CLT). Пластины толщиной 0.5 и 1 мм были вырезаны перпендикулярно полярной оси и отполированы до оптического качества.

Кинетика ДС в PGO при циклическом переключении поляризации исследовалась стробоскопическим методом с разрешением 1 мкс. Статическая ДС после частичного переключения визуализировалась методом сканирующей микроскопии пьезоэлектрического отклика (СМПО).

Исследование изменения величины пьезоэлектрического поля производилось в CLN и MgO:CLN. Пластины нагревали и охлаждали в диапазоне от 300 до 500K в оптическом термостате Linkam THMSE 600. Поляризационный оптический микроскоп Olympus BX51 и видеокамера позволяли получать серии мгновенных изображений ДС при нагреве и охлаждении с контролируемой скоростью. Наблюдаемая площадь составляла 2.5 мм².

Исследования изменения формы изолированных доменов в результате нагрева и охлаждения производились в MgO:CLN при помощи сканирующего зондового микроскопа (СЗМ) NTEGRA Aura (НТ-МДТ, Россия). Домены создавались приложением напряжения амплитудой 200 В между нижним сплошным электродом и зондом СЗМ с токопроводящим покрытием и последующим перемещением зонда со скоростью 0,1 мкм/с. Нагрев осуществлялся с помощью термостолика СЗМ.

Импульсный нагрев CLN и MgO:CLN производился двумя способами:пусканьем импульсов тока вдоль металлического электрода, нанесенного на поверхность пластины, и импульсным лазерным облучением. В качестве источника ИК излучения использовался импульсный CO₂ лазер с длиной волны 10.6 мкм в системе для обработки материалов Universal Laser System 3.60 (ЦЛТ, Россия). Длительность импульсов – от 0.2 до 5 мс, плотность энергии – от 4 до 20 Дж/см². В качестве источника УФ излучения с длиной волны 266 нм использовалась 4-ая гармоника импульсного твердотельного лазера Brilliant (Quantel, Франция) на алюмоиттриевом гранате (YAG), легированном неодимом (Nd). Длительность импульса - 4 нс, частота - 10 Гц, плотность энергии – от 1 до 10 Дж/см².

In-situ визуализация кинетики ДС в CLN после нагрева одиночным импульсом CO₂ лазера осуществлялась с помощью поляризационного оптического мик-

роскопа Olympus BX51 и скоростной камеры Fastcamera 13 с частотой до 500 кадров в секунду и размерами матрицы 1024x1000 пикселей.

Визуализация статических ДС после селективного химического травления в концентрированной плавиковой кислоте (HF) при комнатной температуре в течение 10 минут для LN и 60 мин для LT производилась с помощью оптического и атомно-силового микроскопов. Для визуализации ДС без травления использовались: СМПО и сканирующая лазерная конфокальная микроскопия комбинационного рассеяния (СЛКМ-КР). Для реализации СМПО между проводящим зондом и нижним электродом прикладывалось переменное электрическое напряжение с частотой 17 кГц и амплитудой 5 В, что приводило к колебанию поверхности образца за счет пьезоэффекта. При сканировании регистрировался локальный пьезоотклик, амплитуда и фаза которого определяются величиной и знаком поляризации, соответственно. Метод СЛКМ-КР основан на регистрации изменений спектров комбинационного рассеяния (КР), индуцированных искажением кристаллической решетки вблизи доменных стенок, которые вызваны неоднородным распределением внутреннего электрического поля в полидоменных образцах. Изменения интенсивности линий $A_1(LO_4)$ и $E(TO_8)$ спектра КР вблизи доменных стенок, использовались для построения двумерных изображений ДС как на поверхности образца, так и в его объеме [9]

В третьей главе представлены результаты исследования кинетики ДС в PGO в широком диапазоне скоростей бокового движения доменных границ, в том числе, при сильнонеравновесных условиях переключения.

Медленное движение доменных стенок. Кинетика ДС при равновесном переключении PGO представляет собой рост доменов шестиугольной формы за счёт образования и роста ступеней на доменных стенках [4]. Такой рост доменов наблюдался в полях незначительно превышающих пороговое значение и при полном экранировании деполяризующих полей, возникающих за движущейся доменной стенкой ($R < 1$). При этом плотность изолированных доменов $> 10 \text{ мм}^{-2}$, а скорость бокового движения стенок около 0,1 мм/с (Рис. 1а). Форма растущих доменов не изменялась при слиянии (Рис. 1б,в).

Быстрое движение доменных стенок (скорость около 10 мм/с) сопровождалось качественным изменением кинетики ДС, вызванным неполным экранированием деполяризующих полей ($R \geq 1$). Концентрация изолированных доменов около 200 мм^{-2} (Рис. 2а). Их рост приводит к слиянию (Рис. 2б) и формированию

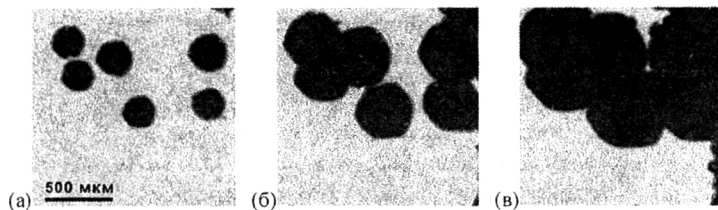


Рис. 1 Рост доменов в PGO при полном экранировании. $E_{ex} = 2.5 \text{ кВ/см}$, $t_s = 6 \text{ с}$. Между кадрами 0.5 с.

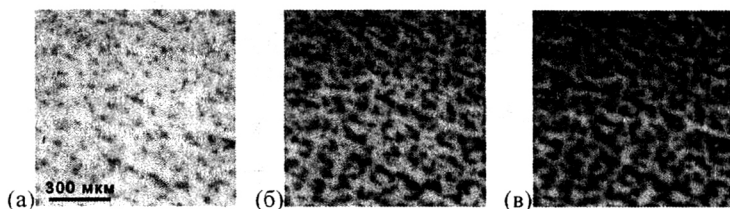


Рис. 2 Формирование ЛДС в PGO при неполном экранировании. $E_{сх} = 4$ кВ/см, $t_s = 3$ мс. Между кадрами 0.5 мс.

лабиринтовой доменной структуры (ЛДС) (Рис. 2в). Дальнейший рост происходит только за счёт одномерного бокового движения доменных стенок.

Статистический анализ показал, что ЛДС может быть рассмотрена как самоподобная «фрактальная» структура. Фрактальная размерность определялась скейлинговым методом [10]. Зависимость количества квадратов N , необходимых для покрытия переключённой области (тёмных доменов на Рис. 2), от размера квадратов a аппроксимировалась степенной зависимостью: $N(a) = A a^{-D}$, где D – фрактальная размерность.

Диапазон скейлинга (интервал масштабов, в котором выполняется степенная зависимость) увеличивается с ростом доли переключенной области P (Рис. 3). Нижняя граница диапазона скейлинга соответствует минимальному размеру квадрата, при котором зависимость отклоняется от степенной. При $P = 0.4$ во всем диапазоне скейлинга от 10 до 200 мкм выполняется степенная зависимость, что соответствует образованию фрактального доменного лабиринта с $D = 1.8$.

Дополнительно для последовательности мгновенных изображений ДС с помощью Фурье преобразования были рассчитаны двумерные автокорреляционные функции [10], что позволило выявить зависимость «среднего периода» ДС от P (Рис. 3в). Период при $P = 0.01$ определяется концентрацией доменов (около 200 мкм^{-2}). Полученная зависимость свидетельствует о замедлении роста доменов при сближении, вызванном электростатическим взаимодействием при неполном экранировании деполяризующих полей.

Сверхбыстрое движение доменных стенок. Для создания сильнонеравновесных условий переключения ($R \gg 1$), вводилось ограничение тока за счет увеличения сопротивления внешней цепи, что замедляло внешнее экранирование. В

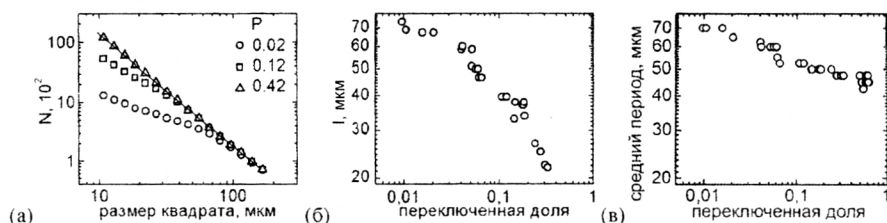


Рис. 3 (а) Фрактальный анализ ДС в PGO для различной доли переключенной области P . Зависимости от P : (б) нижней границы диапазона скейлинга, (в) «среднего периода» ДС.

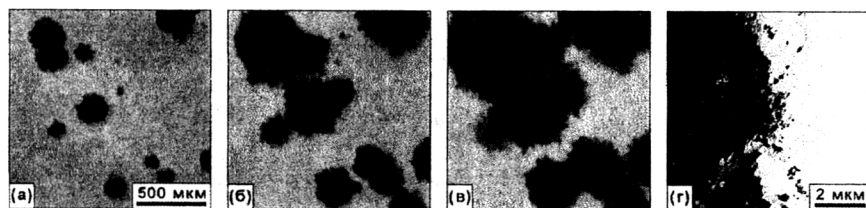


Рис. 4 (а),(б),(в) Аномальная кинетика ДС в PGO при неэффективном экранировании. $E_{\text{сх}} = 8 \text{ кВ/см}$, $t_s = 2 \text{ мс}$. Между кадрами 0,3 мс. (г) СМПО изображение границы домена (тёмная область соответствует растущему домену).

этом случае средняя скорость движения доменных границ около 1 м/с , все домены образовывались только в начале переключения с концентрацией около 20 мм^{-2} , а растущие домены имели неправильную форму (Рис. 4а,б,в). В отличие от других режимов кинетика ДС при циклическом переключении не воспроизводилась детально. Визуализация ДС с высоким пространственным разрешением показала, что домены не имеют чётких границ и перед движущейся доменной стенкой образуются изолированные субмикронные домены (Рис. 4г). Таким образом, впервые в PGO обнаружен эффект дискретного переключения с формированием субмикронных изолированных доменов.

В четвёртой главе представлены результаты исследования изменения пироэлектрического поля $E_{\text{пуг}}$ в MgO:CLN в цикле нагрев/охлаждение с контролируемой скоростью. Проведено компьютерное моделирование изменения $E_{\text{пуг}}$ для однородного нагрева/охлаждения монодоменной пластины. Представлены зависимости $E_{\text{пуг}}$ от скорости изменения температуры, начальной температуры и максимальной температуры нагрева. Исследовано изменение формы изолированных доменов с заряженными стенками в результате нагрева и в результате охлаждения.

Переключение пироэлектрическим полем является весьма удобным методом реализации сильнонеравновесных условий переключения в LN и LT. Отсутствие электродов приводит к тому, что компенсация деполяризующего поля происходит только за счёт медленных механизмов объёмного экранирования.

Для экспериментального измерения температурной зависимости пироэлектрического поля производился однородный нагрев и охлаждение с постоянной скоростью пластины MgO:CLN с несквозными клиновидными доменами. При изменении температуры вблизи заряженных доменных стенок возникает пироэлектрическое поле, перпендикулярная полярной оси компонента которого изменяет показатель преломления, вследствие электрооптического эффекта. Для качественного изучения температурной зависимости пироэлектрического поля измерялась интенсивность света, проходящего вблизи заряженной доменной стенки в оптической схеме со скрещенными поляризаторами (Рис. 5).

При нагреве наблюдалось линейное увеличение интенсивности прошедшего света до температуры T_{max} , после чего интенсивность уменьшалась и становилась равной нулю при температуре T_0 ($T_0 = 420\text{К}$ при $dT/dt = 2\text{К/мин}$). При охлаждении от температуры, превышающей 420К , интенсивность прошедшего света начи-

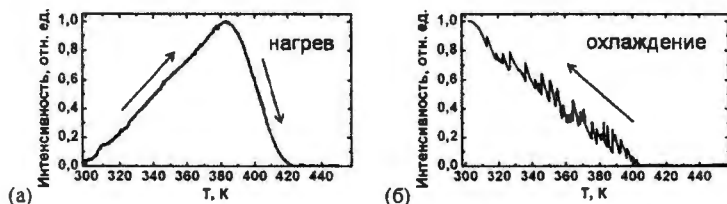


Рис. 5 Температурная зависимость интенсивности прошедшего поляризованного света через MgO:CLN при однородном (а) нагреве и (б) охлаждении со скоростью 2К/мин.

нала линейно расти ниже 400К и сохранялась после окончания охлаждения. Таким образом, наблюдался температурный гистерезис.

Моделирование температурной зависимости E_{pyr} . Для объяснения наблюдаемых эффектов было проведено компьютерное моделирование температурной зависимости E_{pyr} при однородном нагреве и охлаждении монокристаллической пластины LN. Возможность переключения поляризации не учитывалась.

Известно, что при изменении температуры сегнетоэлектрика изменяется величина спонтанной поляризации и за счет запаздывания экранирования деполяризующего поля E_{dep} возникает пьезоэлектрическое поле E_{pyr}

$$E_{pyr}(T, t) = E_{dep}(T(t)) - E_{scr}(t(T)) = P_s(T(t)) / \epsilon(T(t)) \epsilon_0 - E_{scr}(t(T)), \quad (1)$$

где $\epsilon(T)$ – диэлектрическая проницаемость, ϵ_0 – диэлектрическая постоянная.

Температурная зависимость спонтанной поляризации

$$P_s(T) = A \cdot (T_c - T)^{1/2}, \quad (2)$$

где T_c – температура фазового перехода, A – определялась из эксперимента.

В диапазоне температур от 300 до 500К в LN сосуществуют электронная и ионная проводимости, и температурная зависимость имеет вид [11]

$$\sigma(T) = \sigma_1 \exp(-W_{ac1}/kT) + \sigma_2 \exp(-W_{ac2}/kT), \quad (3)$$

где W_{ac1} и W_{ac2} – энергии активации, σ_1 и σ_2 – коэффициенты.

Рассматривался нагрев и охлаждение с постоянной скоростью dT/dt :

$$T(t) = T_0 + (dT/dt) \cdot t \quad \text{при нагреве}$$

$$T(t) = (T_0 + \Delta T) - (dT/dt) \cdot t \quad \text{при охлаждении} \quad (4)$$

где T_0 – начальная температура, ΔT – диапазон изменения температуры.

При отсутствии внешнего экранирования постоянная времени релаксации изменения деполяризующего поля τ определяется объемной проводимостью

$$\tau(T) = \epsilon(T) \epsilon_0 / \sigma(T), \quad (5)$$

Уравнение релаксации плотности экранирующих зарядов $\rho_{scr}(T(t))$:

$$d\rho_{scr}(T(t))/dt = - [\rho_{scr}(T(t)) - P_s(T(t))] / \tau(T(t)) \quad (6)$$

Решением данного уравнения является

$$\rho_{scr}(T(t)) = -P_s(T_0) \cdot \exp\left[-\int_0^t \frac{1}{\tau(T(t'))} dt'\right] - \int_0^t \frac{P_s(T(t'))}{\tau(T(t'))} \cdot \exp\left[\int_0^t \frac{1}{\tau(T(t'))} dt' - \int_0^t \frac{1}{\tau(T(t'))} dt'\right] dt' \quad (7)$$

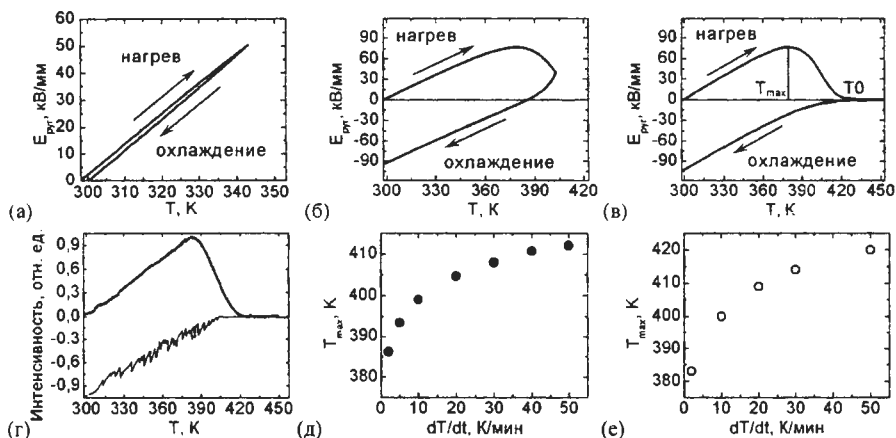


Рис. 6 Результаты расчета $E_{pyt}(T)$ в цикле нагрев/охлаждение для $dT/dt = 2$ К/мин, $T_0 = 300$ К, ΔT : (а) 45 К, (б) 105 К, (в) 165 К. (г) Температурная зависимость интенсивности прошедшего света. Зависимости от скорости нагрева (д) рассчитанной T_{max} для E_{pyt} и (е) экспериментальной T_{max} для интенсивности прошедшего света.

Температурная зависимость пьезоэлектрического поля:

$$E_{pyt}(T) = [P_s(T(t)) - \rho_{scr}(T(t))]/\epsilon(T)\epsilon_0 \quad (8)$$

Были проведены численные расчёты $E_{pyt}(T)$ для различных T_0 , ΔT и dT/dt . Примеры основных типов полученных зависимостей представлены на Рис. 6.

Следует отметить, что при нагреве до T_{max} величина E_{pyt} достигает максимального значения E_{max} и скорость экранирования равна скорости увеличения деполяризующего поля $dE_{scr}/dt = dE_{dep}/dt$.

Таблица 1. Закономерности изменения E_{pyt} при однородном нагреве и охлаждении

		$(T_0 + \Delta T) < T_{max}$	$(T_0 + \Delta T) > T_0$
1	Нагрев	$E_{pyt} > 0$	$E_{pyt} = 0$
2	Охлаждение при $(T_0 + \Delta T) < T_{max}$	$E_{pyt} > 0$	-
3	Охлаждение при $(T_0 + \Delta T) > T_0$	$E_{pyt} < 0$	$E_{pyt} = 0$
4	Охлаждение при $T_{max} < (T_0 + \Delta T) < T_0$	$E_{pyt} > 0 \rightarrow E_{pyt} < 0$	-

При дальнейшем нагреве до температуры T_0 величина E_{pyt} уменьшается до нуля и поверхностная плотность экранирующего заряда равна спонтанной поляризации $P_s(T_0) = \sigma_{scr}(T_0)$.

Основные закономерности изменения E_{pyt} при нагреве и охлаждении представлены в таблице 1.

Знак E_{pyt} определяется относительно направления спонтанной поляризации. $E_{pyt} > 0$ означает, что пьезоэлектрическое поле и спонтанная поляризация направ-

лены в одном направлении; $E_{\text{pyr}} < 0$ – в разных направлениях; $E_{\text{pyr}} = 0$ – пирозлектрическое поле отсутствует.

Из приведенных в таблице 1 результатов следует, что при нагреве образования новых доменов невозможно, а существующие сквозные домены могут уменьшаться в размерах. Аналогичная ситуация возникает и при охлаждении после нагрева до температуры ниже T_{max} . Только при охлаждении после нагрева кристалла выше T_0 ($(T_0 + \Delta T) > T_0$) возможно образование новых доменов и увеличение размеров существующих сквозных доменов.

Следует отметить, что расчётные значения E_{max} , полученные без учета переключения поляризации, превышают экспериментальные пороговые поля образования и роста доменов в MgO:CLN . При учете переключения E_{pyr} уменьшается на величину переключенного заряда. Естественно, что существует ограничение на максимально возможную долю площади, переключенной E_{pyr} , которая пропорциональна половине относительного изменения величины спонтанной поляризации $\Delta P_s/P_s$ в температурном интервале, в котором $E_{\text{pyr}}(T) > E_{\text{th}}(T)$ (Рис. 7).

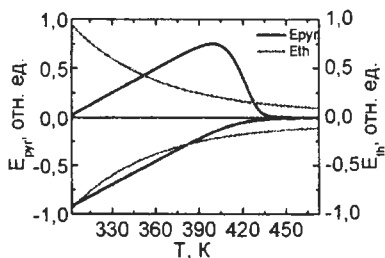


Рис. 7 Температурные зависимости E_{pyr} и E_{th} . $dT/dt = 10\text{K/мин}$, $T_0 = 300\text{K}$, $\Delta T = 190\text{K}$

Изменения размеров изолированных доменов в результате нагрева и охлаждения. Предложенная модель позволяет, в частности, объяснить наблюдавшееся уменьшение размеров сквозных доменов в SLT после цикла нагрев/охлаждение между 300K и 373K, которое не удалось объяснить авторам [12]. В рамках развитого подхода полученный эффект вызван переключением в пирозлектрическом поле при $(T_0 + \Delta T) < T_{\text{max}}$.

Нами впервые отдельно изучено влияние нагрева и охлаждения на несквозные домены с заряженными доменными стенками в MgO:CLN . Домены записывались при 423K приложением напряжения 200 В с помощью проводящего зонда СЗМ. Скорость нагрева составляла 10K/мин, а охлаждение - после выключения напряжения на нагревательном элементе. ДС визуализировалась методом СМПО при 300K и 423K. Показано, что нагрев до 423K приводит к увеличению несквозных доменов, а охлаждение до 300K – к их уменьшению (Рис. 8).

Измерения температурной зависимости интенсивности проходящего света показали, что в MgO:CLN при $dT/dt = 10\text{K/мин}$: $T_{\text{max}} = 406\text{K}$, $T_0 = 443\text{K}$, что соответствует режиму 4 (таблица 1) и при охлаждении изменяется знак поля (Рис. 6б).

Таким образом, экспериментально показано, что в отличие от сквозных доменов, несквозные домены при нагреве увеличиваются, а при охлаждении после нагрева выше T_{max} - уменьшаются. Полученное различие в рамках предложенной модели можно отнести за счет того, что для сквозного домена переключение определяется знаком пирозлектрического поля вне домена, а для доменов с заряженными доменными стенками - знаком пирозлектрического поля в домене.

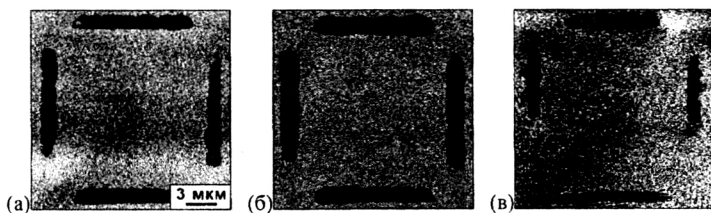


Рис. 8 СМПО изображения доменов в MgO:CLN: (а) при температуре 300К, (б) после нагрева от 300К до 425К, (в) после охлаждения от 425К до 300К.

В пятой главе представлены результаты исследования формирования ДС в сильнонеравновесных условиях переключения, создаваемых в результате локального импульсного нагрева, что позволило существенно увеличить напряженность переключающего пирозлектрического поля.

Локальный нагрев производился: 1) пропусканием импульсов тока вдоль металлического электрода, нанесенного на полярную поверхность и 2) импульсами сильно поглощаемого лазерного излучения. При этом нагревалась лишь часть пластины, а охлаждение осуществлялось за счёт переноса тепла в не нагретую часть. При интерпретации результатов учитывалось, что при локальном нагреве величина $E_{\text{прп}}$ определяется изменением P_S в тонком слое под нагреваемой поверхностью и можно ограничиться приближением однородного изменения температуры [13].

Нагрев пропусканием импульсов тока использовался для того, чтобы продемонстрировать возможность ориентированного роста доменных лучей в пирозлектрическом поле.

На полярную поверхность пластины методом ионно-плазменного реактивного распыления металлической мишени наносились прозрачные электроды на основе $\text{In}_2\text{O}_3:\text{SnO}_2$ размерами 1x4 мм и толщиной 400 нм. Сопротивление электродов составляло около 100 Ом. Образец медленно нагревали в термостате. Импульсный нагрев производился пропусканием одиночного импульса тока.

Было показано, что при 463К, длительности импульса 0.5 мс и плотности выделяемой на электроде энергии около 5 Дж/см² под электродом образовывались изолированные несквозные шестиугольные домены с концентрацией до 50 мм⁻² (Рис. 9а). Повышение плотности энергии за счёт увеличения амплитуды тока существенно изменяло ДС. При энергии больше 10 Дж/см² наблюдался рост узких до-

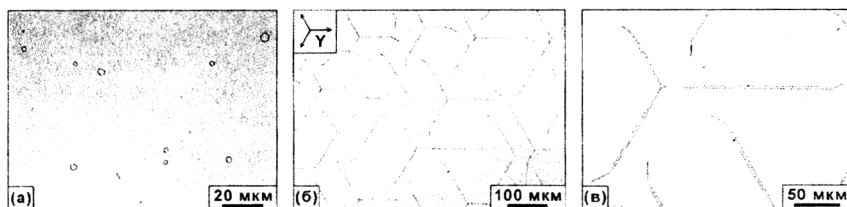


Рис. 9 ДС в MgO:CLN после нагрева пропусканием импульса тока вдоль электрода. Температура 463К. Длительность импульса 0,5 мс, плотность энергии (а) 5 Дж/см², (б),(в) 11,3 Дж/см². Оптическая микроскопия после химического травления.

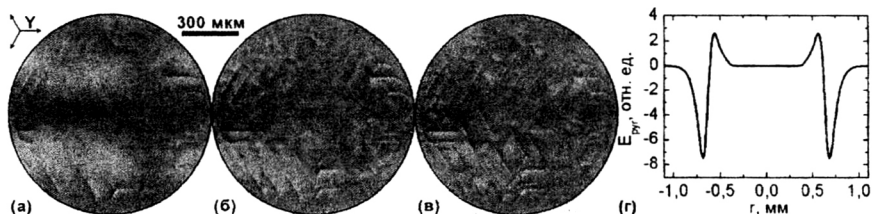


Рис. 10 Мгновенные изображения ДС в CLN после облучения одиночным ИК импульсом через (а) 11 мс, (б) 28 мс, (в) 78 мс от начала импульса длительностью 3 мс при плотности энергии 12.7 Дж/см^2 . (г) Расчёт распределения $E_{р/г}$ при локальном облучении [13].

менных лучей вдоль трёх Y направлений (Рис. 9б). Ширина доменных лучей изменялась от сотен нанометров до единиц микрон.

Импульсное лазерное облучение.

Ранее было показано, что в CLN после импульсного облучения ИК лазером формируются самоорганизованные ДС, состоящие из доменных лучей [8], но не проводились систематические исследования эффекта.

С помощью скоростной видеокамеры впервые был непосредственно визуализирован процесс формирования ДС после облучения CLN одиночным ИК импульсом. На Рис. 10а,б,в представлены последовательные мгновенные изображения ДС после окончания лазерного импульса длительностью 3 мс.

Визуализация кинетики ДС, вызванной импульсным лазерным воздействием, позволила определить время формирования структуры от 10 до 90 мс при длительности облучающего импульса от 1 до 4.5 мс. Важно отметить, что переключение начиналось через некоторое время после окончания импульса, которое увеличивалось от 3 до 35 мс при увеличении длительности импульса.

Анализ полученных изображений позволил исследовать три последовательных стадии эволюции ДС: 1) зародышеобразование, 2) рост доменных лучей, 3) ветвление [8]. На первой стадии происходило образование новых доменов только на краю облученной зоны (Рис. 10а), что объясняется максимумом $E_{р/г}$ (Рис. 10г), распределение которого было посчитано в работе [13]. Вторая стадия представляла собой одномерный рост узких доменных лучей от края к центру облученной зоны, преимущественно вдоль трёх Y кристаллографических направлений (Рис. 10б). На стадии ветвления появлялись лучи второго поколения, рост которых начинался от лучей первого поколения (Рис. 10в).

Исследование ДС методом СМПО показало, что лучи образуются в результате слияния цепей изолированных нанодоменов (Рис. 12а).

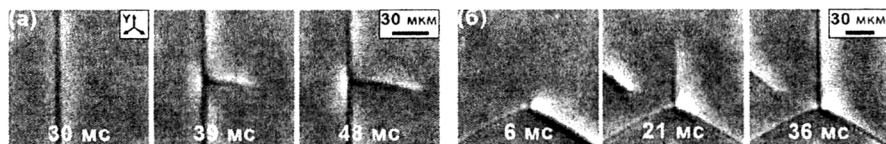


Рис. 11 а) Ветвление и б) формирование трёх лучевой звезды в CLN после облучения одиночным ИК импульсом.

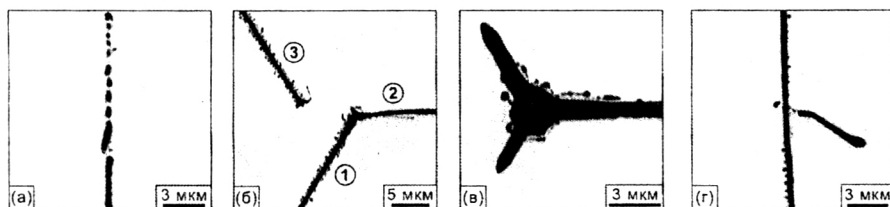


Рис. 12 Изображения ДС в CLN, полученных после облучения ИК лазерным импульсом: а) цепь изолированных нанодоменов, переходящих в луч; формирование трёх лучевой звезды: (б) первый и (в) второй сценарии; (г) ветвление. Визуализация методом СМПО.

Установлено, что на стадии ветвления всегда существует задержка между моментом образованием лучей первого и второго поколения (Рис. 11а). Рост луча второго поколения, как правило, происходит перпендикулярно лучу первого поколения (в X направлении) и начинается на некотором расстоянии от него (Рис. 12г).

Впервые были выявлены сценарии формирования трёх лучевой звезды в центре облученной зоны. **Первый сценарий** начинался с образования изолированного домена с последующим ростом доменных лучей, аналогичным ветвлению (Рис. 11б). Вначале растут два луча, а третий - возникает через некоторое время на некотором расстоянии (Рис. 12б). Формирование звезды можно рассматривать как рост двух лучей первого поколения и одного луча второго поколения. **Второй сценарий** реализуется за счет одновременного роста трёх лучей из несмежных вершин существовавшего шестиугольного домена (Рис. 12в), что обусловлено детерминированным зародышеобразованием в LN [14].

Доля переключенной площади после импульсного лазерного нагрева составляет менее процента от площади облученной зоны, поэтому в качестве основной характеристики переключения поляризации использовалась суммарная длина лучей (Рис. 13а). Доля лучей, ориентированных в Y направлении (L_Y/L), характеризовала анизотропию роста. Из Рис. 13б видно, что в процессе формирования ДС анизотропия существенно уменьшается.

Задержка между окончанием лазерного импульса и началом переключения определяется временем, необходимым для охлаждения от максимальной температуры нагрева до температуры, при которой величина пьезоэлектрического поля

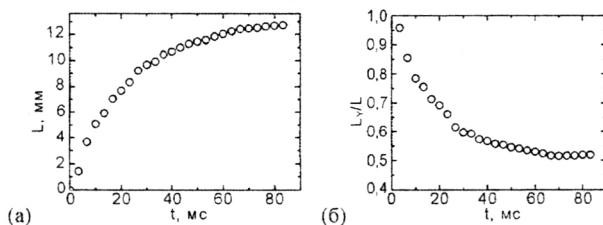


Рис. 13 Зависимость от времени: (а) общей длины доменных лучей, (б) анизотропии роста лучей в CLN после облучения одиночным ИК лазерным импульсом.

превышает пороговое значение. Оценка изменения температуры поверхности пластины позволила получить результаты близкие к экспериментальным.

Облучение при повышенной температуре. Были проведены исследования параметров ДС, образующейся при импульсном лазерном облучении пластины, нагретой до температуры T_0 . Облучение производилось одиночным импульсом с длительностью 1.5 мс и плотностью энергии 11.7 Дж/см². Установлено, что с увеличением T_0 линейно уменьшается общая длина доменных лучей (Рис. 14а), что согласуется с рассчитанным изменением E_{max} (Рис. 14б).

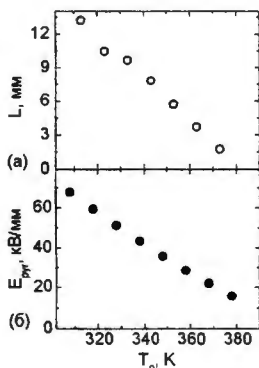


Рис. 14 Зависимость от температуры пластины: (а) общей длины доменных лучей в CLN после облучения одиночным ИК лазерным импульсом, (б) рассчитанного значения E_{max} .

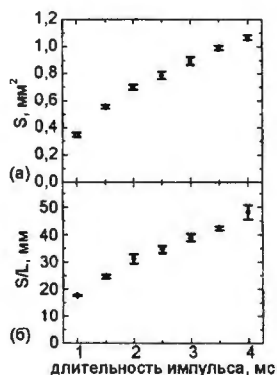


Рис. 15 Зависимости от длительности импульса: (а) площади, занятой ДС S ; (б) «среднего периода» ДС. CLN. Плотность энергии 17 Дж/см²

Зависимость от длительности лазерного импульса. Увеличение длительности лазерного импульса приводит к росту области занятой ДС (Рис. 15а). Причем, практически не изменяются общая длина лучей и анизотропия роста L_y/L_x , а увеличивается «средний период» структуры, равный отношению площади, занятой структурой, к общей длине лучей (Рис. 15б).

Средний период структуры (Рис. 16а) и глубина доменов, измеренная методом СЛКМ-КР (Рис. 16б), слабо изменяются в пределах облученной зоны при длительностях импульса меньше 1 мс (плотность энергии 17 Дж/см²). Однако, при увеличении длительности при переходе от края к центру облученной зоны наблюдается значительное увеличение среднего периода структуры и глубины доменов.

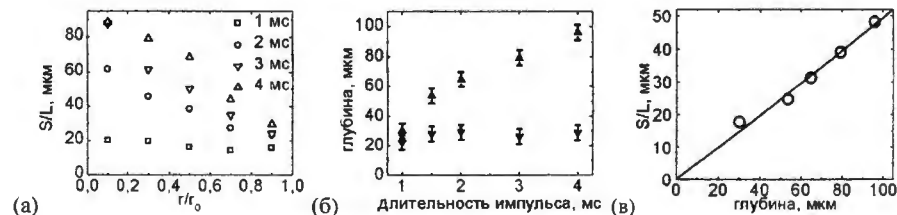


Рис. 16 (а) Нормированная радиальная зависимость «среднего периода» ДС для разных длительностей облучающего импульса. (б) Зависимость от длительности импульса глубины доменов в центре (\blacktriangle) и на краю (\blacktriangledown) облученной зоны. CLN. (в) Зависимость «среднего периода» ДС от глубины доменов (\circ). Линейная аппроксимация с коэффициентом 0.5.

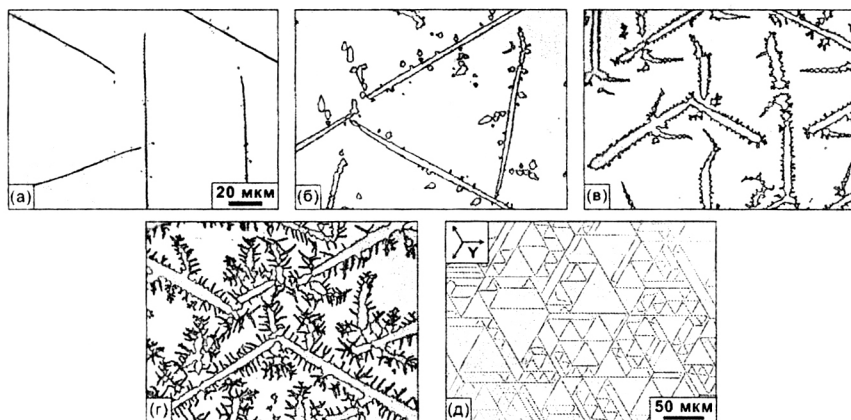


Рис. 17 ДС в CLN после ИК лазерного нагрева разным количеством импульсов: (а) 1; (б) 10; (в) 20; (г) 50. Длительность импульсов 3 мс, плотность энергии 13 Дж/см², частота 1 Гц. (д) Доменные лучи, индуцированные УФ лазерным излучением. Оптическая визуализация после травления. MgO:CLN.

Облучение сериями ИК лазерных импульсов. Экспериментально изучено формирование ДС в результате воздействия серии лазерных импульсов с частотой около 1 Гц. Показано, что основной каркас ДС формируется после первого импульса (Рис. 17а). При воздействии последующих импульсов в основном увеличивается ширина лучей (Рис. 17б). При ширине лучей около 4 мкм наблюдалась потеря устойчивости формы доменных стенок и формирование «доменных пальцев» (fingering) (Рис. 17в,г). Подобные эффекты наблюдались в CLN при самопроизвольном обратном переключении [3], но не исследовались систематически.

Облучение УФ лазерным излучением. Эксперименты по УФ облучению пластин MgO:CLN и CLN показали, что рост доменных лучей происходит строго вдоль Y направлений (Рис. 17д), а при сближении лучей наблюдается изменение направлений роста («отражение»). Наблюдаемые эффекты обусловлены уменьшением пирозлектрического поля, вызванного дополнительным экранированием фотостимулированными носителями заряда.

Формирование квазирегулярных полосовых доменных структур. Наибольший интерес для практического применения представляют квазирегулярные ДС, образующиеся при росте доменных лучей внутри облученной зоны вдоль Y направления. Существует два варианта роста таких структур: а) от края к центру

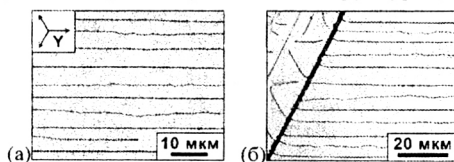


Рис. 18 Квазирегулярные ДС в CLN в результате УФ лазерного облучения, растущие (а) от края облученной зоны и (б) от искусственной «микроцарапины».

облученной зоны, б) от искусственной «микроцарапины» (Рис. 18). Формирование структуры происходит в две стадии. На первой стадии растут «прямые» доменные лучи со средним периодом 7.1 ± 1.9 мкм. Во время второй стадии растут «волнообразные» доменные лучи в пространстве между прямыми лучами. Таким образом, средний период всей ДС уменьшается и равняется 3.9 ± 1.3 мкм.

Кинетика доменной структуры в танталате лития. Экспериментально показано, что нагрев монокристаллических пластин CLT импульсным ИК лазерным излучением приводит к образованию самоорганизованных ДС, особенность которых заключается в образовании изолированных нанодоменов преимущественно в центре облученной зоны и росте нанодоменных цепей от центра облученной зоны к ее краю. Повышение плотности энергии лазерного импульса приводит к полному переключению в поверхностном слое за счёт слияния изолированных доменов и образованию в центре зоны домена с заряженными стенками (Рис. 19). В центре образовавшегося домена вновь образуются изолированные нанодомены.

Наблюдаемые особенности могут быть объяснены в рамках рассмотренного подхода с учетом того, что за счет большей по сравнению с LN величины пирозлектрического поля в центре зоны выше порога образования доменов.

Исследования с помощью СЗМ показали, что в CLT образуются квазирегулярные полосовые ДС, а нанодоменные лучи, как и в LN, состоят из цепей изолированных нанодоменов (Рис. 20). Визуализация края LC позволила выделить различные стадии формирования ДС. Более длинные цепи образовывались раньше, а более короткие – позже. Удалось впервые обнаружить многократное проявление эффекта «удвоения пространственной частоты» нанодоменной структуры (уменьшение периода в два раза). Повышение плотности энергии уменьшает минимальный период квазирегулярной ДС (Рис. 20б). Экспериментально показано, что при плотности энергии 0.7 Дж/см^2 наблюдается три последовательных двукратных уменьшения периода структуры: $3,0 \rightarrow 1,5$ мкм, $1,5 \rightarrow 0,75$ мкм и $0,75 \rightarrow 0,38$ мкм. Эффект удвоения пространственной частоты позволяет получать рекордно малые периоды и открывает новые возможности создания нелинейно-оптических устройств нового поколения на основе развития нанодоменной инженерии.

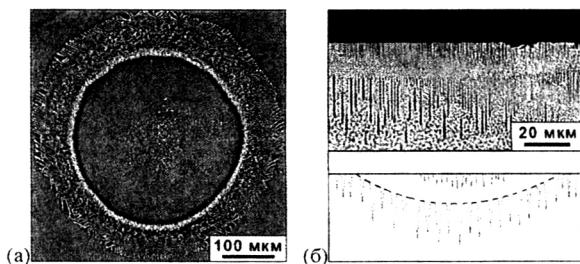


Рис. 19 (а) ДС в CLT после облучения одиночным ИК лазерным импульсом. (б) Y сечение (сверху) и схема заряженной доменной стенки (снизу) облученной зоны. Оптическая визуализация после химического травления.

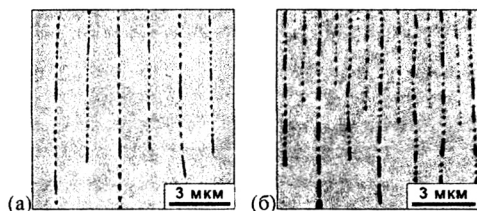


Рис. 20 Изображения квазирегулярных нанодоменных структур в CLT, образующихся в результате импульсного лазерного нагрева. Визуализация рельефа травления с помощью СЭМ.

Формирование регулярных нанодоменных структур при неоднородном облучении. Проводилось исследование возможности создания прецизионных доменных структур в MgO:CLN с помощью импульсного ИК лазерного излучения высокой интенсивности. Для этого на поверхность пластин с помощью фотолитографии наносилась регулярная система металлических аппликаций с заданным периодом и шириной, после чего производилось многократное облучение. Было обнаружено, что увеличение количества импульсов приводит к значительному увеличению переключенной площади (Рис. 21а) и глубины доменов (Рис. 21б). При этом все переключенные домены находятся строго под аппликациями.

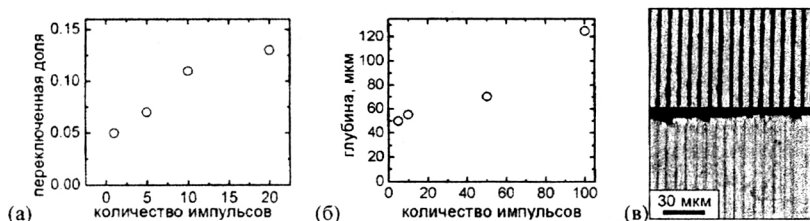


Рис. 21 Зависимость от количества импульсов: (а) доли переключенной области, (б) глубины доменов при многократном неоднородном ИК лазерном облучении через металлические аппликации. (в) Полученная регулярная структура на полярной поверхности и сечении. MgO:CLN .

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ РАБОТЫ

Проведенные исследования формирования доменных структур при переключении поляризации в сильнонеравновесных условиях позволили получить следующие основные результаты.

1. Впервые показано, что в германате свинца при неполном экранировании формируется фрактальная доменная структура, а при неэффективном экранировании перед стенкой возникают субмикронные изолированные домены.
2. Впервые экспериментально показан температурный гистерезис пироэлектрического поля в ниобате лития и рассчитана зависимость его параметров от условий нагрева/охлаждения.
3. Впервые экспериментально показано, что несквозные домены, в отличие от сквозных, увеличиваются при нагреве и уменьшаются при охлаждении.

4. Впервые получен ориентированный рост доменных лучей в пьезоэлектрическом поле после нагрева полярной поверхности пропусканием тока вдоль электрода.
5. Впервые выявлены стадии формирования нанодоменной структуры после ИК облучения и зависимости от времени общей длины доменных лучей и анизотропии их роста. Показано, что задержка переключения равна времени, при котором пьезоэлектрическое поле достигает порогового значения.
6. Зависимости параметров нанодоменных структур, полученных после локального лазерного нагрева, от температуры пластины и длительности импульса объяснены переключением под действием пьезоэлектрического поля.
7. Впервые выявлен эффект потери устойчивости формы доменной стенки после серии ИК лазерных импульсов.
8. Показана возможность формирования регулярных доменных структур в ниобате лития при многократном неоднородном импульсном нагреве, что открывает возможности для создания нелинейно-оптических устройств нового поколения.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Shur V.Ya., Fast polarization reversal process: evolution of ferroelectric domain structure in thin films, in *Ferroelectric thin films: synthesis and basic properties* // NY: Gordon&Breach. – 1996. – Ch. 6. – P. 153-192.
2. Шур В.Я., Доменная структура одноосных сегнетоэлектриков и процессы экранирования // Дис. док. физ.-мат. наук, УрГУ, Свердловск, 1990. – С. 315.
3. Shur V.Ya., Correlated nucleation and self-organized kinetics of ferroelectric domains, in *"Nucleation Theory and Applications"* // WILEY-VCH. – 2005. – Ch.6. – P. 178-214.
4. Shur V.Ya., Gruverman A.L., Letuchev V.V., Rumyantsev E.L., Subbotin A.L., Domain structure of lead germanate // *Ferroelectrics*. - 1989. - V. 98. - P. 29-49.
5. Шур В.Я., Груверман А.Л., Пономарев Н.Ю., Румянцев Е.Л., Тонкачева Н.А., Кинетика доменной структуры при сверхбыстром переключении поляризации в германате свинца // *Письма в ЖЭТФ*. - 1991. - Т. 53. - С. 591-594.
6. Shur V.Ya., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E.V., Shishkin E.I., Fursov D.V., Batchko R.G., Eyres L.A., Fejer M.M., Byer R.L., Nanoscale backswitched domain patterning in lithium niobate // *Appl. Phys. Lett.* - 2000. - V. 76. - P. 143-145.
7. Valdivia C.E., Sones C.L., Scott J.G., Mailis S., Eason R.W., Scrymgeour D.A., Gopalan V., Jungk T., Soergel E., Clark I., Nanoscale surface domain formation on the +z face of lithium niobate by pulsed ultraviolet laser illumination // *Appl. Phys. Lett.* - 2005. - V. 86. - P. 022906-1-022906-3.
8. Kuznetsov D.K., Shur V.Ya., Negashev S.A., Lobov A.I., Pelegov D.V., Shishkin E.I., Zelenovskiy P.S., Ivanov M.G., Osipov V.V., Formation of nano-scale domain structures in lithium niobate using high-intensity laser irradiation // *Ferroelectrics*. - 2008. - V. 373. - P. 133-138.

9. Zelenovskiy P., Fontana M., Shur V., Bourson P., Kuznetsov D., Raman visualization of micro- and nanoscale domain structures in lithium niobate // Appl. Phys. A. - 2010. - V. 99. - P. 741-744.
10. Russ J.C., Fractal Surfaces // Plenum Press. - 1994. - P. 313.
11. Кузьминов Ю.С., Электрооптический и нелинейнооптический кристалл ниобата лития // Наука. - 1987. - С. 264.
12. Liu X., Kitamura K., Terabe K., Thermal stability of LiTaO₃ domains engineered by scanning force microscopy // Appl. Phys. Lett. - 2006. - V. 89. - P. 142906.
13. Lobov A.I., Shur V.Ya., Kuznetsov D.K., Negashev S.A., Pelegov D.V., Shishkin E.I., Zelenovskiy P.S., Discrete switching by growth of nano-scale domain rays under highly-nonequilibrium conditions in lithium niobate single crystals // Ferroelectrics. - 2008. - V. 373. - P. 99-108.
14. Shur V.Ya., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E.V., Shishkin E.I., Fast and superfast motion of ferroelectric domain boundaries // Integrated Ferroelectrics. - 2003. - V. 59. - P. 1493-1503.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи в ведущих рецензируемых научных журналах:

1. Shur V.Ya., Baturin I.S., Rumyantsev E.L., Pelegov D.V., **Mingaliev E.A.**, Samarin P.V., Direct Study of Super-fast Domain Kinetics in Lead Germanate Single Crystals // Ferroelectrics – 2006. – V. 341. – P. 67-74.
2. Kuznetsov D.K., Shur V.Ya., **Mingaliev E.A.**, Negashev S.A., Lobov A.I., Rumyantsev E.L., Novikov P.A., Nanoscale Domain Structuring in Lithium Niobate Single Crystals by Pulse Laser Heating // Ferroelectrics – 2010. – V. 398. – P. 49-54.
3. **Mingaliev E.A.**, Shur V.Ya., Kuznetsov D.K., Negashev S.A., Lobov A.I., Formation of Stripe Domain Structures by Pulse Laser Irradiation of LiNbO₃ Crystals // Ferroelectrics – 2010. - V. 399. - P. 7-13.
4. Zelenovskiy P.S., Shur V.Ya., Bourson P., Fontana M.D., Kuznetsov D.K., **Mingaliev E.A.**, Raman Study of Neutral and Charged Domain Walls in Lithium Niobate // Ferroelectrics – 2010. - V. 398. - P. 34-41.
5. Зеленовский П.С., Шур В.Я., Кузнецов Д.К., **Мингалиев Е.А.**, Fontana M., Bourson P., Визуализация нанодоменов в монокристаллах ниобата лития методом сканирующей лазерной конфокальной микроскопии комбинационного рассеяния // ФТТ – 2011. – Т. 53, Вып.1. – С. 106-109.

Подписано в печать «03» мая 2011 г. Формат 60×84/16

Печать офсетная. Бумага типографская.

Заказ 33 Усл. печ.л. 1,4 Тираж 100

Уральский государственный университет
620000, г. Екатеринбург, К-83, Ленина, 51

Типолаборатория УрГУ